

THÈSES

PRÉSENTÉES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES
DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ÈS SCIENCES PHYSIQUES

PAR

Jean-Claude FAYOLLE

1^{re} Thèse. — Sur la réalisation, par bromuration d'un hydrosol d'argent, de nouvelles émulsions nucléaires de plus haute sensibilité.

2^{me} Thèse. — Sur l'existence probable de deux sortes de neutrinos.

Soutenues le 30 JAN. 1963 devant la Commission d'examen.

MM. MORAND

Président.

BROCHARD

RIOU

} *Examineurs.*

FACULTÉ DES SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

Doyen M. ZAMANSKY.

PROFESSEURS

G. JULIA	T	Analyse supérieure et Algèbre supérieure.	HOCART	T	Minéralogie et cristallog.
DE BROGLIE	T	Théories physiques.	J.-P. MATHIEU	T	Physique (Optique).
PRENANT	T	Anatomie et Histologie comparées.	COUTEAUX	T	Biologie animale (P.C.B.).
GRASSÉ	T	Evolution des êtres organisés.	MAY	T	Zoologie (Orsay).
PREVOST	T	Chimie organique.	CHOQUET	T	Théorie des fonctions et Topologie.
CHAUDRON	T	Chimie appliquée.	FELDMANN	T	Biologie végétale marine.
WYART	T	Minéralogie et Cristal.	GUINIER	T	Physique des solides (Orsay).
TEISSIER	T	Zoologie.	JOST	T	Physiologie comparée.
MANGENOT	T	Biologie végétale (Orsay).	FORTET	T	Calcul des probabilités et Physique mathématique.
AUGER	T	Physique quantique et Relativité.	SCHWARTZ	T	Calcul différentiel et intégral.
MONNIER	T	Physiologie générale.	CHOUARD	T	Physiologie végétale.
PIVETEAU	T	Paléontologie.	MALAVARD	T	Aviation (Techn. aéronaut.).
ROCARD	T	Physique (E.N.S.).	BRELOT	T	Calcul différentiel et intégral.
CARTAN	T	Mathématiques (E.N.S.).	NORMANT	T	Synthèse organique générale.
LAFFITTE	T	Chimie générale.	BENARD	T	Chimie minérale.
FAVARD	T	Géométrie supérieure.	BUVAT	T	Botanique (E.N.S.).
COULOMB	T	Physique du Globe.	DUGUE	T	Statistiques mathématiques.
M ^{lle} COUSIN	T	Biologie animale (S.P.C.N.).	SOULAIRAC	T	Psychophysiologie.
CHRÉTIEN	T	Chimie minérale.	ULRICH	T	Physiologie végétale.
DRACH	T	Zoologie.	MARÉCHAL	T	Optique théorique et appl.
KASTLER	T	Physique (E.N.S.).	KIRRMANN	T	Théories chimiques.
EPHRUSSI	T	Génétique.	CHADEFAUD	T	Botanique.
RIVIÈRE	T	Géologie S.P.C.N. et sédim.	M ^{lle} LE BRETON	T	Physiologie de la nutri.
GAUTHERET	T	Biologie végétale (P.C.B.).	SALEM	T	Mathématiques générales.
R. LUCAS	T	Recherches physiques.	LELONG	T	Applic. de l'analyse à la géométrie.
A. THOMAS	T	Biologie cellulaire.	DEVILLERS	T	Anatomie et Histologie comp.
ARNULF	T	Optique appliquée.	EBRESMANN	T	Topologie algébrique.
MORAND	T	Physique Enseignement.	FRANÇON	T	Physique (S.P.C.N.).
SOLEILLET	T	Physique (P.C.B.).	GLANGEAUD	T	Géographie phys. et Géologie dynamique.
FORTIER	T	Mécanique exp. des fluides.	GODEMENT	T	Mathématiques (M.P.C.).
DANJON	T	Astronomie.	PISOT	T	Tech. mathém. de la physique.
PETIT	T	Biologie maritime.	ROCH	T	Géologie.
QUENEY	T	Météorologie et dynamique atmosphérique.	SCHATZMAN	T	Astrophysique.
GALLIEN	T	Embryologie.	TERMIER	T	Paléontologie stratig.
EICHHORN	T	Botanique.	ZAMANSKY	T	Mathématiques générales.
DE CUGNAC	T	Biologie végétale (S.P.C.N.).	LENNUIER	T	Physique (M.G.P.).
M ^{lle} CAUCHOIS	T	Chimie physique.	RIZET	T	Génétique (Orsay).
THELLIER	T	Physique du Globe.	ROUTHIER	T	Géologie appliquée.
L'HÉRITIER	T	Biologie générale (Orsay).	M ^{me} TONNELAT	T	Physique théorique.
GRIVET	T	Radioélectricité (Orsay).	DIXMIER	T	Mathématiques (M.P.C.).
PONCIN	T	Mécanique générale.	SOUCHAY	T	Chimie générale.
DUBREIL	T	Arithmétique et théorie des nombres.	AIGRAIN	T	Electrotechnique générale.
QUELET	T	Chimie organique.	BRUSSET	T	Chimie systématique.
CAGNIARD	T	Géophysique appliquée.	M. LÉVY	T	Physique théorique des hautes énergies (Orsay).
CHAMPETIER	T	Chimie macromoléculaire.	M ^{me} CHAIX	T	Chimie biologique.
CUVILLIER	T	Micropaléontologie.	M ^{me} HURET-PY	T	Biologie végétale (P.C.B.).
JUNG	T	Pétrographie.	PIAUX	T	Chimie (M.P.C.).
TRILLAT	T	Microscopie et diffraction électronique.	BRUN	T	Mécan. théorique des fluides.
WIEMANN	T	Chimie organique et struc.	LEDERER	T	Chimie biologique.
JACQUINOT	T	Spectroscopie et physique céleste (Orsay).	M ^{me} DUBREIL	T	Mathém. (Agrégation).
VASSY	T	Physique de l'atmosphère.	M ^{me} LELONG	T	Mathématiques (E.N.S.).
D. STOICHES	T	Théories physiques.	BELLAIR	T	Géologie (S.P.C.N.).
AMIEL	T	Chimie générale.	COTTE	T	Physique électricité.

A Monsieur le Professeur Max MORAND.

Hommage respectueux.

A mes parents.



Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41550210_0038

SUR LA RÉALISATION, PAR BROMURATION D'UN HYDROSOL D'ARGENT, DE NOUVELLES ÉMULSIONS NUCLÉAIRES DE PLUS HAUTE SENSIBILITÉ

par JEAN-CLAUDE FAYOLLE

I. INTRODUCTION

Instrument permettant d'enregistrer les particules ionisantes, l'émulsion ionographique est devenue l'une des techniques fondamentales de la physique nucléaire, grâce aux progrès réalisés dans sa fabrication. Celle-ci est basée sur la formation d'un précipité en solution¹. La technique adoptée par la plupart des fabricants^{2,3}, technique dite du « double jet », est cependant difficile à réaliser dans des conditions identiques, avec une répartition en dimensions des cristaux très peu étalée.

De plus, dans les émulsions fournies dans le commerce, près du minimum d'ionisation, les traces des particules présentent une faible granulation. Aux très grandes vitesses la petite variation de la granulation due à une forte variation de l'énergie reste donc dans les limites des fluctuations statistiques de la densité de grains.

Il était donc intéressant de chercher à obtenir des traces à plus forte densité de grains. Pour cela, il fallait augmenter le nombre de cristaux par unité de volume, c'est-à-dire, à concentration égale, obtenir des cristaux plus nombreux et plus fins.

Reprenant la méthode employée par M. N. LEROY⁴ en 1929, J. COLOMER & C. SCHOE-BEL^{5,6} réalisèrent des émulsions à grains très fins par bromuration d'argent colloïdal. Ils utilisèrent d'abord, comme solution bromurante, une solution de sulfate de cuivre et de bromure de potassium. Malgré des résultats prometteurs, cette méthode présente des inconvénients car la présence de sels de cuivre dans l'émulsion, diminue la sensibilité des émulsions. Ils employèrent ensuite une solution de ferriicyanure et de bromure de potassium. Malgré une sensibilisation à la triéthanolamine, les résultats furent décevants.

En 1960, J. COLOMER⁷ adopta la bromuration à l'eau de brome. Les résultats obtenus furent très intéressants, car les émulsions ainsi bromurées possédaient des cristaux d'environ $0,03 \mu\text{m}$, tout en conservant une sensibilité satisfaisante⁸, de l'ordre de grandeur de 700 eV , permettant l'observation de traces de protons de 10 MeV .

Comparé au procédé classique de formation des cristaux de bromure d'argent, ce nouveau procédé présente plusieurs avantages.

Un premier avantage est immédiatement visible : la dimension des cristaux de bromure d'argent ne résulte pas d'un grossissement progressif des cristaux formés, ni d'une maturation ultérieure, toutes opérations difficiles à contrôler.

D'autre part, la finesse des grains permet d'accroître le pouvoir de discrimination de l'émulsion.

Enfin, la préparation des émulsions nucléaires par une bromuration effectuée directement sur le support solide, doit permettre de limiter les déformations parasites des émulsions ordinaires.

Dans le présent travail, nous avons cherché à améliorer la qualité des émulsions obtenues par bromuration d'un hydrosol d'argent dispersé dans la gélatine, spécialement pour augmenter leur sensibilité. Dans le cas des émulsions exposées à la lumière, on sait que chaque cristal de AgBr doit absorber un certain nombre de quanta pour que s'y forme

un germe d'image latente. Ce nombre de quanta, variable d'un cristal à un autre, dépend des traitements sensibilisateurs et désensibilisateurs auxquels la couche sensible a été soumise avant son exposition à la lumière et du degré de développement. Comme l'ont montré certains auteurs^{9, 10}, la sensibilité de la couche photographique est proportionnelle au diamètre des cristaux.

Ces considérations peuvent être étendues au comportement des émulsions ionographiques vis-à-vis des particules ionisantes : pour devenir développable, un cristal doit recevoir une certaine quantité minimale E_1 d'énergie ; la sensibilité de ce cristal peut alors être définie par $1/E_1$. Ce seuil d'énergie peut être déterminé en supposant que seuls les rayons δ de faible énergie interviennent dans la formation de l'image latente ainsi que l'ont suggéré MORAND *et al.*¹¹. La relation de BRADT & PETERS¹² donne alors le nombre de rayons δ d'énergie comprise entre E_1 et E_2 émis sur un parcours dR de la particule d'où l'on déduit le nombre de cristaux rendus développables ou nombre de grains. L'énergie E_2 est l'énergie maximale d'un rayon δ qui ne sort pas du cristal, cette énergie sera d'autant plus grande que le cristal sera plus gros. Nous avons donc étudié une technique de bromuration permettant d'obtenir des cristaux de AgBr légèrement plus gros que ceux des émulsions J.C.S. mais tout en restant dans le domaine des cristaux très fins. Un développement convenable a été utilisé pour permettre une observation normale au microscope, mais sans augmenter la densité des grains du voile qui est directement liée à la sensibilité des émulsions.

Nous avons donc été amenés à étudier simultanément les effets chimiques susceptibles d'agir sur la sensibilité et sur le voile de nos émulsions ; de sorte que le but de notre travail a été la recherche de la sensibilité optimale, compatible avec un minimum de densité de grains de voile.

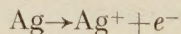
L'intérêt de cette étude se trouve dans l'amélioration d'un instrument de travail qui joue un rôle important dans l'étude des particules aux hautes énergies.

II. DONNÉES GÉNÉRALES SUR LA PRÉPARATION D'ÉMULSIONS IONOGRAPHIQUES PAR BROMURATION D'ARGENT COLLOÏDAL

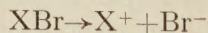
A. Principe. — Le produit de départ est l'agent utilisé sous forme de micelles dispersées dans la gélatine.

Pour obtenir la transformation de cet argent en bromure d'argent, deux problèmes se posent :

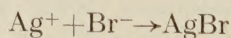
a) *Oxydation.* — Nous devons disposer d'un oxydant capable d'enlever un électron à l'argent métal, afin d'obtenir l'ion Ag^+ . Le mécanisme de la réaction est le suivant :



b) *Bromuration.* — Nous devons disposer d'un bromure fournissant les ions Br^- , suivant la réaction :



Le mécanisme de la réaction totale est donc :



L'eau de brome a été adoptée pour réaliser la transformation de l'argent en bromure d'argent, car elle agit à la fois comme agent oxydant et comme agent bromurant.

B. Technologie. — a) *Coulée de la couche argent-gélatine.* — L'argent colloïdal employé est celui de la Société *Prolabo*. Sa teneur en argent métal est d'environ 70 %. Le support organique qui permet de stabiliser l'état colloïdal résulte de l'hydrolyse de protéines ou d'albuminoïdes d'origine animale.

De couleur bleu métallique, l'argent colloïdal, dissous dans l'eau, produit une suspension de micelles de couleur brun foncé. L'étude de la dimension de ces micelles a été faite par J.COLOMER⁷, à l'aide du microscope électronique du C.N.R.S. de Bellevue. Les photo-

graphies obtenues montrent que le diamètre moyen se situe aux environs de 80 Å. La dispersion est assez faible et les micelles ont un aspect sphérique.

La gélatine nous a été fournie par la Société *Rousselot*. Nous avons eu la possibilité de faire des essais avec une gamme très étendue de gélatines, depuis les plus inertes, jusqu'aux plus actives. Nous rappelons que l'inertie ou l'activité d'une gélatine est fonction des quantités de sensibilisateurs et de retardateurs qu'elle contient. Le p_H de ces diverses gélatines variait de $p_H=4,4$ à $p_H=6,1$.

La coulée de la couche argent colloïdal-gélatine s'effectue de la façon suivante : nous réalisons à 40° C le mélange d'une solution à 10 % de gélatine, et d'une pseudo-solution à 5 % d'argent colloïdal. Les proportions qui se sont révélées les plus satisfaisantes sont :

6 cm³ d'eau + 0,6 g de gélatine
45 cm³ d'une pseudo-solution d'Ag colloïdal à 5 % (2,25 g d'argent)

Additionné d'un agent plastifiant (glycérine) et d'un agent mouillant (Lissin de *Geigy*), ce mélange est coulé sur une plaque de verre traitée fournie par la Société *Ilford*.

Les plaques sont alors mises à sécher dans une enceinte à degré hygrométrique contrôlé. Un hygrostat permet d'envoyer, soit de l'air sec (air comprimé du laboratoire), soit de l'air humide grâce à un flacon laveur de DURAND. La précision de la coupure de l'hygrostat est d'environ 2 %. Le degré hygrométrique permettant un séchage rapide, sans toutefois provoquer un « écaillage » des plaques, est de 60 %. Toutes ces opérations se font à la lumière du jour. Il convient ensuite, lorsque les plaques sont sèches, de procéder — en chambre noire — à la bromuration.

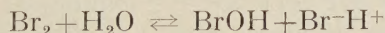
b) *Bromuration*. — La bromuration à l'eau de brome se fait au trempé. Les vapeurs suffocantes de cette solution nous obligent à faire l'opération sous hotte aspirante.

Après un prémouillage de 5 mn dans l'eau distillée, les plaques sont immergées dans une solution contenant 1,45 g de brome par 100 cm³ d'eau (soit 1 cm³ de brome dans 200 cm³ d'eau). Pour des émulsions d'épaisseur 100 μm, la bromuration dure de 4 h 30 à 6 h. On constate qu'elle est terminée lorsque les plaques, observées à l'aide d'une lumière inactinique, sont devenues transparentes.

Nous avons réussi à fabriquer des émulsions de 150 μm, mais au-delà de cette épaisseur, diverses difficultés apparaissent :

- la bromuration devenant très longue (plus de 10 h), les plaques se saturent d'ions Br⁻ difficiles à éliminer ;
- les déformations parasites augmentent considérablement ;
- les opérations de sensibilisation deviennent plus délicates.

Les plaques bromurées sont lavées dans une solution de sulfite, afin d'éliminer le brome en excès, puis lavées à l'eau courante pendant 2 h. Le mécanisme de la bromuration est le suivant :



Nous envisagerons, dans le chapitre III, l'étude plus systématique de cette réaction.

L'étude des cristaux de bromure d'argent obtenus a été faite au microscope électronique^{7, 13}. L'histogramme du nombre de cristaux, fonction de leur diamètre, présente un maximum à 300 ± 20 Å. La largeur de la courbe à mi-hauteur est d'environ 100 Å. Nos émulsions ont donc des cristaux de diamètre 0,03 μm. Rappelons que les émulsions commerciales ont des cristaux de bromure d'argent dont les dimensions varient de 0,28 à 0,1 μm. Certaines émulsions, fabriquées en laboratoire, ont des cristaux de 0,04 μm. Les nôtres sont donc encore plus fins.

c) *Opérations de sensibilisation*. — Les émulsions bromurées sont tout d'abord soumises à l'action d'une solution d'ammoniaque à 2 %, afin d'éliminer, sous forme de bromure d'ammonium, le brome en excès.

Nous avons envisagé ensuite trois types de sensibilisation.

La méthode la plus simple consiste à sensibiliser l'émulsion au trempé, dans une solution de triéthanolamine à 6 % ($p_H=10,3$) durant 15 mn. Après un lavage prolongé afin d'éviter la formation de voile de surface, l'émulsion est plastifiée dans une solution de glycérine à 2 %. Cette méthode de sensibilisation est actuellement très employée en laboratoire, car elle donne généralement satisfaction. P.DEMERS² pense que la triéthanolamine agit comme accepteur de brome. En effet, sans connaître la relation existant entre la sensibilité spectrale à la lumière et la sensibilité aux particules ionisantes, on peut penser que le mécanisme est le même, car la sensibilisation des émulsions de DEMERS par la triéthanolamine accroît l'une et l'autre. Or, l'on sait que les accepteurs de brome sont nécessaires pour obtenir une sensibilité au noircissement direct.

Dans le même ordre d'idées, FRIESER, HEIMANN & RANZ¹⁴ pensent que l'action sensibilisatrice de la triéthanolamine est due à plusieurs facteurs : action réductrice, accepteur d'halogène, pouvoir solubilisant vis-à-vis du bromure d'argent. Les auteurs signalent, d'autre part, que BOGOMOLOV¹⁵ a montré, après une série d'essais, que la triéthanolamine peut être considérée comme *agent de transmission de l'énergie*, de la gélatine aux grains de bromure d'argent.

La deuxième méthode de sensibilisation employée consiste à traiter les émulsions par une solution de triéthanolamine-acide citrique. FARAGGI & GARIN¹⁶ ont constaté que l'on pouvait hypersensibiliser des émulsions Ilford G5 au trempé dans une solution triéthanolamine-acide citrique à $p_H=9,5$.

Par action de ce mélange sur nos plaques, nous avons pu obtenir un accroissement sensible de la granulation des traces de particules, accompagné d'une légère diminution du voile. L'acide citrique joue ici le rôle de stabilisateur. Son action est en partie due au p_H de la solution, car lorsque l'on descend à $p_H=6,6$, l'action de la triéthanolamine se trouve annulée. D'autre part, FARAGGI & GARIN ont essayé de le remplacer par un autre acide, afin de savoir si, seul, le p_H de la solution intervenait. Les auteurs ont alors montré que son remplacement par l'acide acétique ne rendait plus développables les traces au minimum. En conclusion, on peut donc penser que l'acide citrique intervient à la fois par son p_H et par sa structure.

Cette méthode de sensibilisation est celle que nous avons adoptée car elle permet d'obtenir le maximum de sensibilité compatible avec un minimum de densité des grains du voile. Dans le chapitre IV nous envisagerons l'étude comparée des deux méthodes que nous venons de décrire.

Nous avons tenté enfin une sensibilisation à l'or, mais les résultats furent, au début, peu satisfaisants. Des solutions de chlorure d'or ou de sulfocyanure d'or¹⁷ ne nous permettaient pas de sensibiliser nos émulsions. Les divers essais que nous avons effectués conduisaient à des résultats moins intéressants que ceux obtenus par la triéthanolamine. Nous avons essayé de faire varier le rapport ion thiocyanate-chlorure d'or^{18, 19}, mais sans grand résultat. C'est alors que nous avons pensé exploiter les résultats obtenus récemment par divers physiciens^{20, 21}, concernant le rôle de l'ion thiosulfate dans la sensibilisation à l'or.

En particulier, TAVERNIER & FAELEN^{22, 23, 24} expliquent l'action inhibitrice de la gélatine inerte par la formation d'un *gélâtinate d'or*. Les quantités d'or employées lors d'une sensibilisation étant très faibles, les ions chlorure se trouvent en majeure partie réduits par la gélatine et l'on obtient ainsi un *gélâtinate d'or monovalent*. Si l'on ajoute alors du thiosulfate en quantité suffisante pour former du thiosulfate d'or, l'or, ainsi déplacé du composé qu'il avait formé avec la gélatine, a de nouveau la possibilité de diffuser vers les grains de bromure d'argent.

Nous avons essayé cette méthode en employant des solutions de chlorure d'or à 50 % d'or, de formule $AuCl_3$, $NaCl$, $2 H_2O$ et des solutions de thiosulfate de sodium. Nos émulsions sont ensuite hypersensibilisées par la triéthanolamine suivant la technique déjà décrite. Nous avons obtenu une augmentation sensible de la granulation des traces de particules, mais le voile est devenu plus important. Dans toute sensibilisation à l'or, le problème du voile est très complexe et il faudrait disposer d'un agent inhibiteur de voile n'ayant aucune action sur les composés sensibilisateurs.

d) *Développement et fixage.* — Après exposition dans un faisceau de particules, nos émulsions sont traitées de la façon suivante :

Prémouillage (eau distillée)	15 mn
Révéléateur à 15° C	15 mn
Bain d'arrêt (acide acétique à 0,5 %)	15 mn
Fixateur à 15° C	1 h 30 à 2 h
Lavage à l'eau courante	2 h
Glycérinage	
Séchage	

Le révélateur le plus couramment employé est le révélateur *Ilford* ID 19 car, nos grains étant très fins, il permet de les grossir légèrement, ce qui rend l'observation au microscope plus aisée. Voici sa composition :

Metol	2,2 g
Sulfite de sodium	144 g
Hydroquinone	8,8 g
Carbonate de sodium	130 g
Bromure de potassium	4 g
Eau distillée	Q.S. 1 litre

Ce révélateur est employé, dilué au 1/3. Son p_H est de 10,5. D'autre part, nous avons fait des essais avec un révélateur à l'Amidol de composition :

Sulfite de sodium	20 g
Amidol	3 g
Bisulfite de sodium	pour ajuster le p_H

Nous avons fait varier le p_H de ce révélateur de 5,5 à 7,5 et nous avons pu ainsi constater une diminution importante du voile (chapitre IV).

Nous avons aussi essayé un révélateur au trichlorure de titane²⁵ de composition :

5 cm³ d'une solution à 15 % de TiCl₃
95 cm³ de solution de réserve :

K ₂ C ₂ O ₄	28 g
KBr	1,700 g
Auramine au 1/2 000	170 cm ³
Eau distillée	Q.S. 1 litre

Ce révélateur a la propriété « d'élargir » les traces de particules, c'est-à-dire que son action peut être comparée à celle d'un renforçateur. Mais nous avons constaté une corrosion importante des grains de bromure d'argent, ce qui nous a conduit à écarter ce révélateur.

Quant au fixage, nous avons employé initialement du thiosulfate de sodium à 40 % additionné de métabisulfite de potassium afin d'obtenir un p_H égal à 5,8. Les émulsions ainsi fixées présentaient la particularité suivante : les grains étaient rongés en surface sur une épaisseur d'environ 10 μ m²⁶. Il est actuellement admis que cette corrosion est due au fixateur. De nombreux auteurs²⁷ se sont penchés sur cette question et en particulier NICOLAE²⁸ pense que l'attaque des grains d'argent résulte de l'action de produits secondaires de décomposition du thiosulfate sur l'image développée. L'auteur justifie cette explication en remarquant que « tous les facteurs qui accélèrent la corrosion (oxygène, milieu acide) influencent favorablement la cinétique de la décomposition du thiosulfate ».

Pour remédier à cette corrosion, nous avons d'abord employé la technique de OCCHIALINI (communication privée). Celui-ci indique qu'une protection efficace dans le bain de fixage peut être obtenue par addition au thiosulfate de 6 g par litre d'argent. Ce procédé, apportant une amélioration sensible, n'était cependant pas suffisant.

SAMUELOVICH & BARINOVA²⁹ expliquent la corrosion des grains d'argent dans le thiosulfate de sodium par la solubilité partielle de l'argent dispersé. Le degré de dispersion, et la présence d'oxydants ainsi que l'acidification du bain fixateur augmentent la vitesse de solubilité de l'argent. C'est pourquoi nous avons employé un anti-oxydant dans le bain de fixage, tout en contrôlant le p_H de la solution. L'acide L⁺ ascorbique étant un anti-oxydant énergétique, nous avons adopté le fixateur suivant :

Phosphate de sodium disodique	70	g
Acide L^+ ascorbique	2	g
Thiosulfate de sodium	350	g
Phosphate de sodium monosodique	Q.S.P.F.	$p_H=6,5$
Volume de fixateur : 1 litre pour 20 g de AgBr (10 cm de fixateur au-dessus des plaques)		

L'emploi de ce fixateur a résolu le problème de la corrosion et nos émulsions présentent ainsi une meilleure homogénéité dans la distribution des grains de bromure d'argent en profondeur. En ce sens, nous rejoignons la conclusion de H.BRAUN³⁰ : « En ajoutant de l'acide L^+ ascorbique à la solution de thiosulfate de sodium tamponnée à $p_H=6,5$ à l'aide des phosphates mono- et disodique, et en tenant compte des conditions de fixage mentionnées ci-dessus, nous avons pu supprimer cette corrosion catastrophique ».

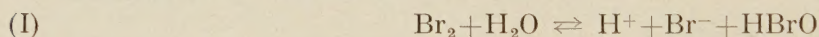
C. Conclusion. — Ayant réussi à obtenir une technique de fabrication satisfaisante de nos émulsions, nous nous sommes alors penchés sur le problème d'une augmentation possible de la sensibilité par accroissement de la taille des cristaux de bromure d'argent, mais ceci tout en restant dans le domaine des cristaux de très petites dimensions.

Simultanément, nous avons cherché à diminuer la densité des grains de voile par action sur la nature de la gélatine, le mode de sensibilisation et le mode de développement.

Nous traiterons donc, dans le chapitre III, d'une technique de bromuration spéciale permettant un léger accroissement de la taille des cristaux de bromure d'argent et, dans le chapitre IV, de l'influence de divers facteurs sur la densité des grains de voile.

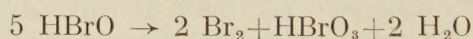
III. ÉTUDE DU MODE DE BROMURATION

A. Mécanisme de la bromuration. — Le mécanisme de la bromuration peut se traduire par la réaction :



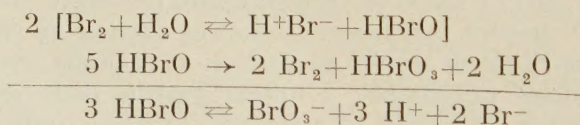
La molécule de brome subit au contact de l'eau une réaction d'hydrolyse réversible. Cette équation permet d'expliquer les phénomènes d'oxydation provoqués par l'eau de brome. L'ensemble des quatre corps en présence est doué d'un pouvoir oxydant énergique.

Cependant, l'équation (I) n'exprime pas totalement le mécanisme de la bromuration. En effet, l'acide hypobromeux peut se transformer en acide bromique suivant la réaction :

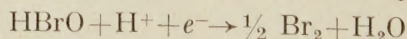


Cette réaction de décomposition est, parmi les différentes réactions que l'on peut envisager, prédominante à l'obscurité³¹, ce qui est évidemment le cas lorsque l'on effectue la bromuration de nos émulsions.

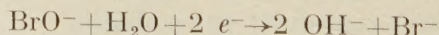
Combinée à la réaction d'hydrolyse du brome, elle permet d'écrire :



En milieu acide, le potentiel d'oxydo-réduction de l'acide hypobromeux est de 1,59 volts :



En milieu basique, son potentiel d'oxydo-réduction est de 0,76 volts :



Ceci nous permet de penser que l'acide hypobromeux agit comme agent d'oxydation et comme agent de bromuration, mais son rôle oxydant est prédominant en milieu alcalin, et son rôle bromurant prédominant en milieu acide.

Nous avons donc été conduit à étudier le mécanisme de la bromuration en fonction du p_H de la solution.

B. Technique de la bromuration. — COLOMER⁷ effectuait la bromuration avec une solution d'eau de brome de $p_H=4,1$. Ce p_H est une fonction décroissante du temps. En effet, il tombe à 2,9 au bout de 5 h de bromuration et à 2,5 au bout de 10 h.

Aussi deux problèmes importants se sont posés :

- étude de la bromuration à l'aide de solutions de p_H plus élevés ;
- étude du p_H des solutions bromurantes en fonction du temps.

En ajoutant à une solution d'eau de brome à 0,5 % des quantités croissantes d'ammoniaque à 20 %, ou de potasse à 10 %, nous avons pu étudier la variation du p_H de la solution bromurante en fonction des quantités de base additionnées. Les mesures de p_H ont été effectuées au p_H -mètre *Beckman* avec une précision de 0,05 unités p_H . La figure 1 représente la courbe relative à l'ammoniaque. La partie BCDE est la courbe classique de neutralisation de l'acide bromhydrique. On peut observer une décoloration progressive de la solution à partir du point B. La décoloration devient totale sur la partie CD. La portion de courbe AB peut s'expliquer par la formation de bromure d'ammonium entraînant un accroissement de la concentration en ions H^+ .

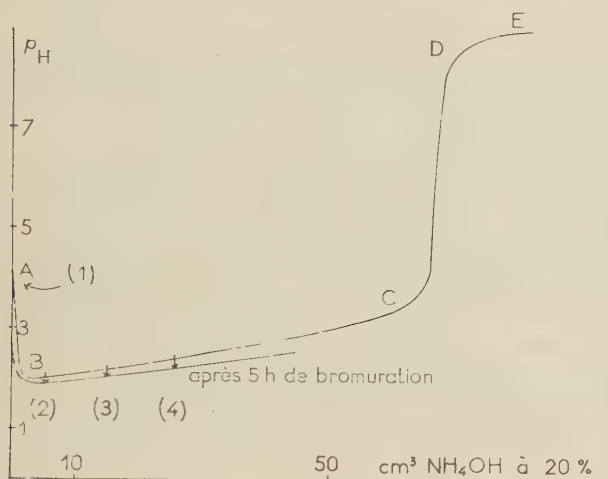


Fig. 1

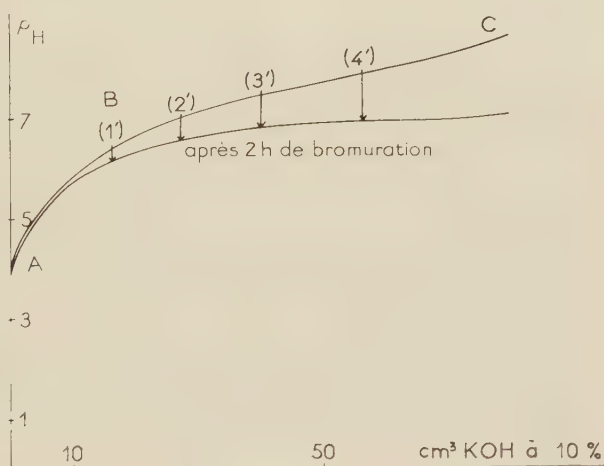


Fig. 2

La figure 2 représente la courbe relative à l'addition de potasse à 10 % dans la solution de bromuration. Au point C la décoloration devient totale ; c'est en ce point que l'on arrive au palier de neutralisation de l'acide bromhydrique (non représenté sur la courbe). Nous nous sommes rapidement aperçu que la bromuration de l'argent colloïdal devient impossible au-delà du palier BC, c'est-à-dire au moment où la décoloration de la solution bromurante est presque complète. Ceci s'explique par le fait que la solution est très appauvrie en brome.

Nous avons fait différentes bromurations correspondant à des p_H variant de 2 à 8 et nous avons étudié la variation de ce p_H en fonction du temps de bromuration.

Nous avons pris des solutions bromurantes correspondant aux points 1, 2, 3, 4 de la figure 1 et 1', 2', 3', 4' de la figure 2. Les variations de p_H correspondantes sont portées en fonction du temps sur les figures 3 et 4.

On voit que la décroissance du p_H est d'autant plus rapide que le p_H initial est plus élevé et ceci, en particulier, au début de la bromuration. Il est donc pratiquement impossible d'effectuer cette bromuration à p_H constant.

Pour remédier à cet inconvénient, nous avons finalement adopté une technique de bromuration *en dents de scie*. Prenons, par exemple, la courbe 4 : la solution bromurante est renouvelée toutes les deux heures ; la courbe C de la figure 3 représente les variations du p_H de la solution en fonction du temps. On peut ainsi voir que nos émulsions sont soumises à une variation de p_H de 0,1 lorsqu'elles sont bromurées, par cette technique, avec une solution eau de brome-ammoniaque correspondant à la courbe 4 (p_H initial = 2,45).

Si l'on veut partir d'un p_H initial de l'ordre de 7,8 (courbe 4'), il faut évidemment renouveler la solution bromurante beaucoup plus souvent afin d'obtenir une faible variation du p_H global.

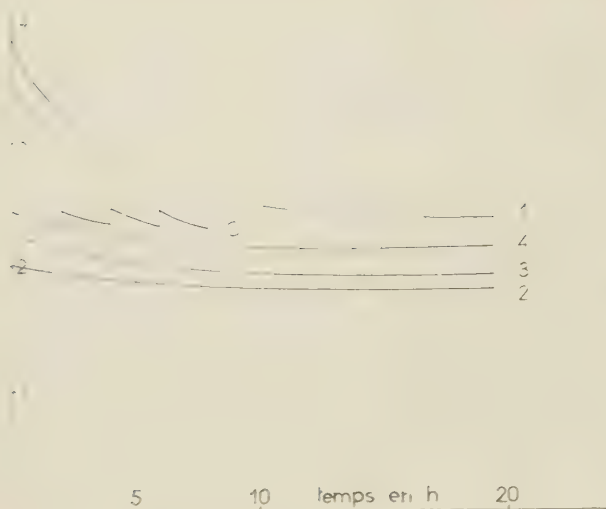


Fig. 3

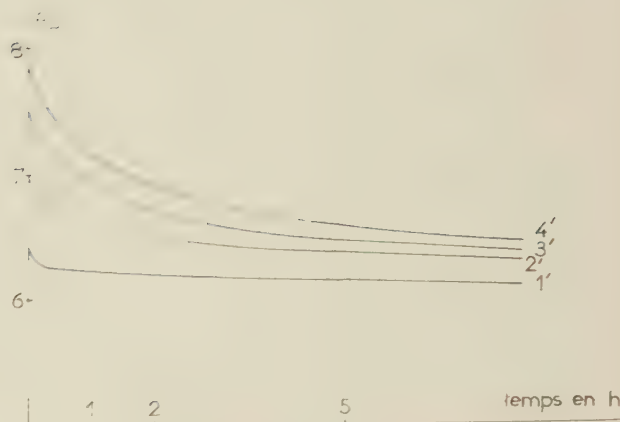


Fig. 4

Cette nouvelle méthode de bromuration nous a donc permis d'obtenir différentes émulsions dans lesquelles les cristaux de bromure d'argent se forment à des p_H compris entre 2 et 8. La teneur en bromure d'argent est de 68 % en poids.

C. Résultats. — Les différents essais effectués ont permis de conclure que la taille de nos cristaux est une fonction lentement croissante du p_H de la solution bromurante et que la sensibilité ionographique de nos émulsions est d'autant plus grande que la valeur de ce p_H est plus élevée. Ceci tend à confirmer l'existence d'une corrélation entre la taille et la sensibilité d'un cristal de bromure d'argent.

Bien que, par cette technique, le voile augmente sensiblement, nous avons adopté la méthode de bromuration par solution eau de brome-potasse de p_H supérieur à 7.

Nous fixant cette règle, il nous a alors fallu diminuer la densité des grains de voile, par action sur les composés intervenant dans l'émulsion, soit avant la bromuration, soit après. Cette étude fait l'objet du chapitre IV.

IV. INFLUENCE DE DIVERS FACTEURS SUR LA DENSITÉ DE VOILE

A. Méthode de mesure. — Les émulsions étudiées ont été bromurées par une solution eau de brome-potasse de $p_H = 7,2$. Après les avoir exposées aux particules alpha du polonium, nous les avons observées à l'aide d'un microscope binoculaire *Stiassnie* muni d'un objectif *Zeiss 120* et d'oculaires 4. Le dénombrement des grains a été effectué sur une surface de $876 \mu m^2$ et dans une épaisseur de $3 \mu m$ d'émulsion. Le volume de comptage était donc de $2\,628 \mu m^3$.

Tous les grains contenus dans ce volume ont été comptés. Pour éviter que l'estimation ne soit faussée par l'exploration d'une seule zone plus ou moins voilée, nous avons fait plusieurs séries de comptages dans la région centrale des émulsions. Soit N_i le nombre de grains à chaque pointé et n le nombre de pointés. La moyenne des différents comptages est :

$$m = \frac{\sum N_i}{n}$$

et la densité des grains de voile :

$$d = \frac{10^3 m}{2\,628} \text{ grains par } 1000 \mu m^3$$

L'incertitude sur chaque mesure est donnée par :

$$e = \frac{0,6745}{\sqrt{n-1}} \sqrt{\sum (m - N_i)^2}$$

L'erreur probable sur m est :

$$m = \frac{0,6745}{\sqrt{n(n-1)}} \sqrt{\Sigma(m-N_i)^2}$$

B. Influence de la nature de la gélatine. — Disposant d'une gamme importante de gélatines fournies par la Compagnie *Rousselot*, nous avons fait des essais avec des gélatines très inertes et des gélatines actives. Elles portaient la dénomination « gélatines pour émulsion nucléaire ». Leurs références sont :

Gélatines plus inertes	Lot n°	8259 A	de p_H	4,4
		8259 B		4,45
		8259 C		4,5
		8259 D		4,6
	Type	4708		4,8
		Lot n° 8018 A		5
		8018 B		5,2
		8018 C		5,4
		13 619		6,1

COLOMER⁷ employait la gélatine type 4708. Nous avons essayé les diverses gélatines du lot 8259, mais il est apparu très vite qu'elles occasionnaient un voile beaucoup trop important dû à la présence d'une trop grande quantité de sensibilisateurs.

Les gélatines n°s 8018 B, 8018 C et 13 619, conduisant à un voile très faible, ne présentent pas des propriétés de résistance mécanique convenant à notre mode de fabrication. C'est pourquoi nous avons adopté la gélatine du lot n° 8018 A ; tout en convenant bien à notre procédé de fabrication, elle produit un voile dans nos émulsions nettement inférieur à celui produit par la gélatine type 4708.

Ses caractéristiques principales nous ont été données par un bulletin d'analyse de la Compagnie *Rousselot* :

Point de prise	30,1°
Point de fusion	34,5°
p_H	5,0
Cendres	1 %
Métaux lourds	traces
Graisse	néant
Indice d'alun de chrome	1,5

C. Influence du mode de sensibilisation. — Nous étudions la variation de la densité des grains du voile pour différents p_H du révélateur, les émulsions étant sensibilisées soit à la triéthanolamine de $p_H=10,3$, soit à l'ensemble triéthanolamine-acide citrique de $p_H=9,5$.

Les figures 5 et 6 représentent les courbes obtenues en portant le nombre de grains de voile pour $1\ 000\ \mu m^3$ en ordonnées et le p_H du révélateur en abscisses. Elles sont relatives aux profondeurs de 10 et 20 μm dans l'émulsion.

On voit que la sensibilisation à la triéthanolamine-acide citrique provoque une sensible diminution du voile par rapport à la sensibilisation à la triéthanolamine seule.

D. Influence du mode de développement. — Nous étudions la variation de la densité des grains de voile en fonction du p_H du révélateur, à différentes profondeurs, et pour deux durées de développement.

Les révélateurs employés sont l'ID 19 à $p_H=10,5$ et un révélateur à l'Amidol dont le p_H est ajusté à 5,5, 6,5 et 7,5 à l'aide du bisulfite de sodium. Les émulsions sont fixées à l'aide du fixateur à l'acide L^+ ascorbique, de $p_H=6,5$. Les courbes des figures 7 et 8 représentent la variation de voile à différentes profondeurs dans l'émulsion et pour des durées respectives de développement de 15 et 30 mn.

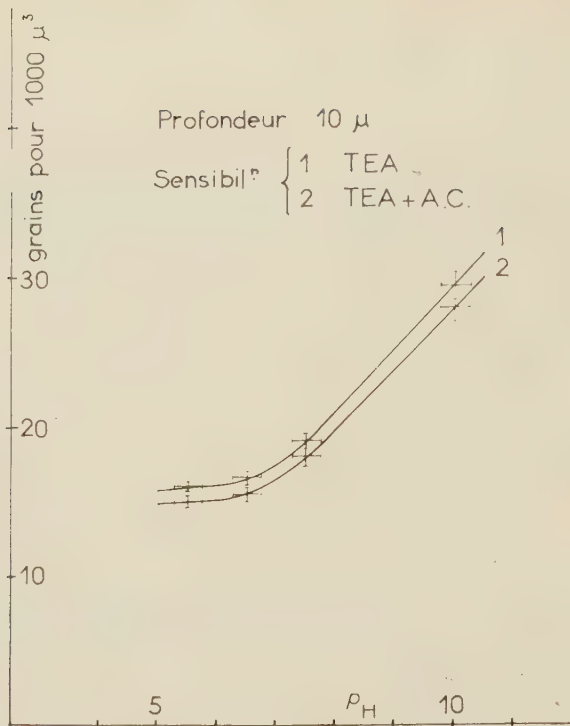


Fig. 5

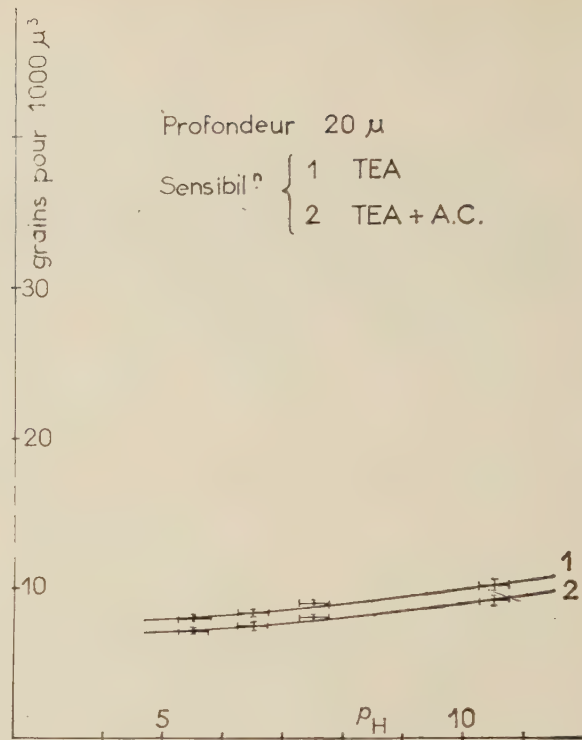


Fig. 6

Afin d'étudier les divers traitements du point de vue de l'uniformité, nous avons tracé (fig. 9 et 10) les courbes de variation du nombre de grains de voile par 1 000 μm^3 en fonction de la profondeur dans l'émulsion.

Bien que l'ID 19 présente l'avantage de grossir plus les grains qu'un révélateur à l'Amidol, ce dernier possède néanmoins des propriétés intéressantes. L'examen des différentes courbes tracées permet d'aboutir aux conclusions suivantes :

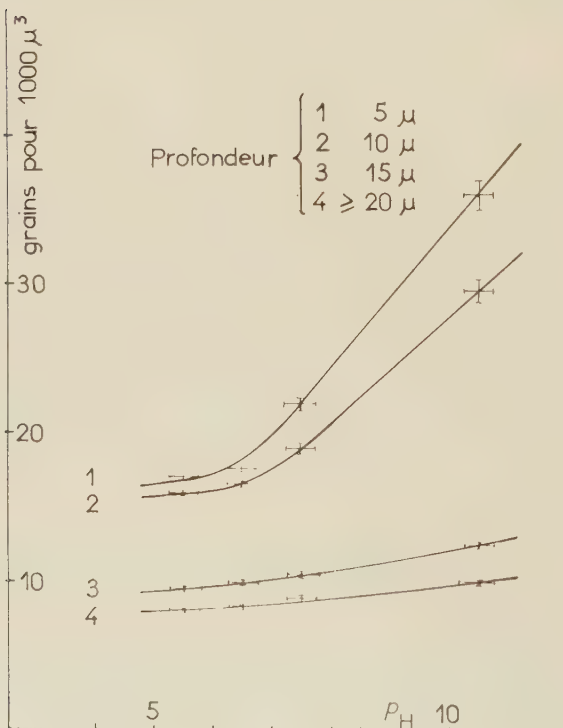


Fig. 7

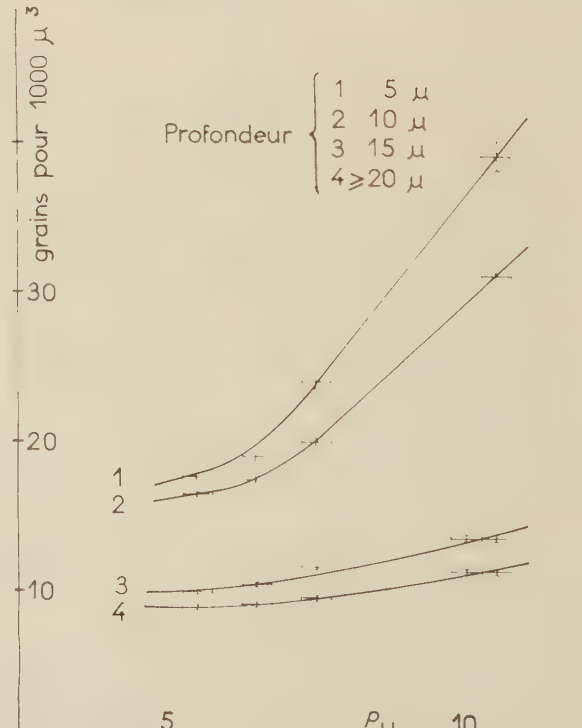


Fig. 8

1. le voile est une fonction rapidement croissante du p_H du révélateur, pour des p_H compris entre 7,5 et 11 et pour la zone d'émulsion proche de la surface ;
2. cette variation de voile est considérablement plus faible à l'intérieur de l'émulsion (à partir d'une profondeur de 15 μm) ;
3. pour des révélateurs de p_H inférieur à 7,5, la variation de voile fonction de ce p_H est faible ;
4. les courbes relatives à l'ID 19 (courbe 4) et au révélateur à l'Amidol (courbes 1, 2, 3, fig. 9 et 10) présentent des courbures différentes. Le développement paraît plus uniforme lorsqu'il est effectué avec un révélateur à l'Amidol.

Ces résultats sont comparables à ceux obtenus par BERMOND³² avec des émulsions Ilford G5.

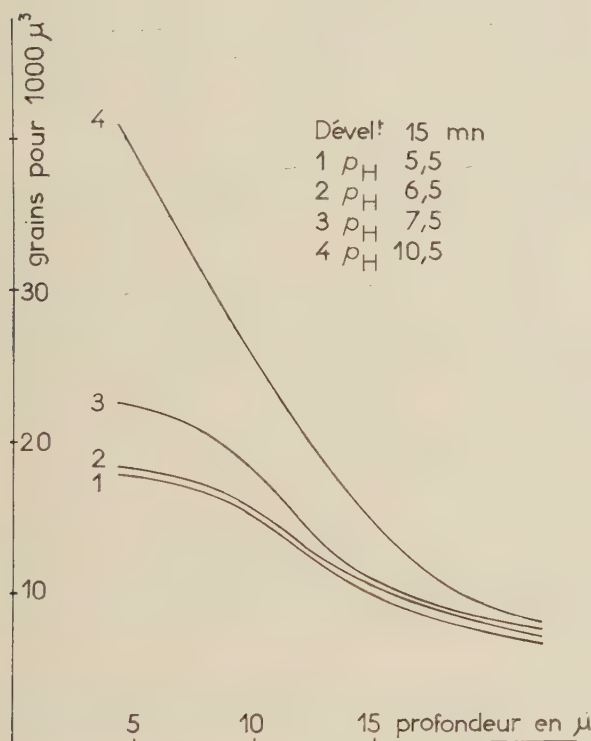


Fig. 9

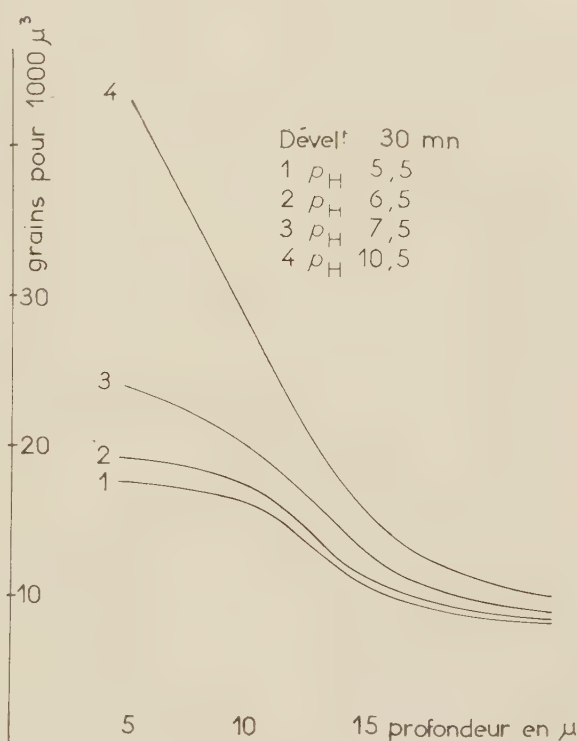


Fig. 10

E. Conclusion. — Ces diverses mesures nous ont permis de réduire la densité des grains de voile de façon importante, en employant un révélateur à l'Amidol dont le p_H est ajusté aux environs de 7,5.

D'autre part, il est intéressant d'étudier, compte tenu de la densité de voile, la limite de granulation au-delà de laquelle une trace de particule ne sera plus perceptible.

Si l'on appelle L la distance moyenne des grains d'une trace, l la distance minimale moyenne des grains de voile et ρ la densité de voile par unité de surface, on a :

$$l = k / \sqrt{\rho} \quad \text{avec} \quad k = 0,5$$

Une trace sera visible si L est inférieure à l .

Si nous prenons comme valeur moyenne de la densité de voile la valeur obtenue à une profondeur de 10 μm pour un développement à l'Amidol (fig. 9), nous avons une densité volumique de 0,02 grain par μm^3 . La profondeur de champ du système optique étant de 0,25 μm , la densité des grains de voile par unité de surface est de : 0,005 grain par μm^2 . Donc :

$$\rho = 5 \times 10^{-3} \text{ grains}/\mu\text{m}^2$$

et :

$$l = k / \sqrt{\rho} = 7 \mu\text{m}$$

Les relations précédentes nous permettent de conclure que la limite inférieure de granulation d'une trace visible serait de 15 grains par 100 μm .

Les émulsions J.C.S.⁷ avaient une densité de voile de 0,052 grain par μm^2 , soit $l=2,2$ μm . Nos émulsions présentent donc, malgré des techniques différentes de bromuration et de sensibilisation, un voile moindre.

V. RÉSULTATS OBTENUS PAR IRRADIATION DES ÉMULSIONS

A. Exposition des plaques. — Afin de tester la sensibilité de nos émulsions, nous avons réalisé différentes expositions.

Les émulsions irradiées avaient été bromurées par une solution eau de brome-potasse de $p_{\text{H}}=7,2$; elles ont été développées par un révélateur à l'Amidol de $p_{\text{H}}=7,5$ et fixées à l'aide du fixateur à l'acide L^+ ascorbique de $p_{\text{H}}=6,5$.

a) *Exposition au bêtatron.* — Nous avons exposé des émulsions dans un faisceau d'électrons de 10 MeV, au bêtatron du C.N.R.S. de Villejuif.

Nous n'avons pu observer les traces d'électrons relativistes en partie à cause de la présence dans nos plaques d'un voile important dû au flux de γ accompagnant le faisceau d'électrons. Seuls les électrons lents sont bien visibles.

b) *Exposition aux électrons du tritium.* — Nous avons déposé sur nos plaques quelques gouttes d'eau tritiée. Rappelons que le tritium, de période 12 ans, possède une énergie de rayonnement β de 0,018 MeV. Les électrons du tritium ont donc un parcours très faible correspondant à une trajectoire dans l'émulsion d'au maximum 2 grains. C'est ainsi que nous avons observé, au microscope, une plage de très forte densité de grains développés à l'endroit où nous avions déposé les gouttes d'eau tritiée.

Ce résultat peut conduire à des applications biologiques intéressantes en autoradiographie.

c) *Exposition aux protons.* — L'exposition a été faite au synchrocyclotron de la Faculté des Sciences (Centre d'Orsay) dans un faisceau de protons d'énergie 150 MeV.

Pour que la densité de traces ne soit pas trop élevée dans nos plaques, nous nous sommes fixé à 10 le nombre de traces par champ de microscope, ce qui correspond à une intensité d'environ 10^5 protons par cm^2 .

Le comptage des protons a été effectué grâce à un système électronique de coïncidence. L'intensité du faisceau étant de 200 coups par seconde, nous avons irradié nos émulsions pendant 500 secondes afin d'obtenir la valeur de 10^5 protons par cm^2 .

Deux sortes d'émulsions ont été exposées :

1. Plaques sensibilisées à l'or selon la technique décrite chapitre II.

L'étude systématique de ces émulsions n'a pas été poussée, à cause de la très forte densité des grains de voile. Néanmoins, l'étude des traces de protons nous a permis de mettre en évidence une augmentation d'environ 7 % de la granulation par rapport aux traces obtenues dans des émulsions sensibilisées seulement à la triéthanolamine-acide citrique.

2. Plaques normales, sensibilisées au mélange triéthanolamine-acide citrique.

Les plaques présentant un voile faible, il nous a été possible de faire l'étude détaillée des traces de protons.

B. Etude des plaques exposées aux protons. - a) *Détermination du voile.* — Les émulsions exposées au synchrocyclotron présentent une densité de voile de 0,007 grain par μm^2 . La distance minimale moyenne l des grains de voile est alors de 6,02 μm et une trace de particule sera visible si elle possède une granulation supérieure à 17 grains par 100 μm .

Dans ce cas, il y a lieu de distinguer le voile photographique dû aux divers traitements subis par l'émulsion et le voile γ dû à l'irradiation. C'est pourquoi les chiffres obtenus ici sont supérieurs à ceux du chapitre IV. (Le rayonnement γ d'une source de polonium représentant environ 10^{-3} % du rayonnement total, on peut admettre que les différentes mesures du chapitre IV représentent le voile propre de nos émulsions.)

b) *Etude des traces.* — 1. COURBE GRANULATION-PARCOURS RÉSIDUEL. — Nous avons étudié la variation de granulation sur des traces de protons se terminant dans l'émulsion : 12 protons de longueur variant entre 450 et 800 μm ont pu être suivis. Nous n'avons pas pu observer de traces de longueur supérieure à 800 μm à cause de la faible épaisseur de nos émulsions. L'étude de la granulation nous a permis de tracer l'histogramme de la figure 11 (courbe 1). En ordonnée est porté le nombre de grains par 100 μm et en abscisse, le parcours résiduel en μm .

La courbe 2 a été obtenue en 1961⁸ avec des émulsions J.C.S. La différence de granulation est importante et il est immédiatement visible que la sensibilité obtenue est nettement supérieure.

2. CALCUL DE LA SENSIBILITÉ PAR LES RAYONS δ DE FAIBLE ÉNERGIE. — Afin de reprendre la méthode de calcul exposée par M. MORAND, S. DESPREZ-REBAUD & M.-C. LEFÈVRE-LE GENTIL¹¹, nous sommes amenés à déterminer le pouvoir d'arrêt de nos émulsions pour connaître la vitesse de la particule correspondant au parcours mesuré. Il est bien évident que vu la teneur en AgBr de nos émulsions (68 %), elles ont un pouvoir d'arrêt inférieur à celui des émulsions commerciales (81 % de AgBr).

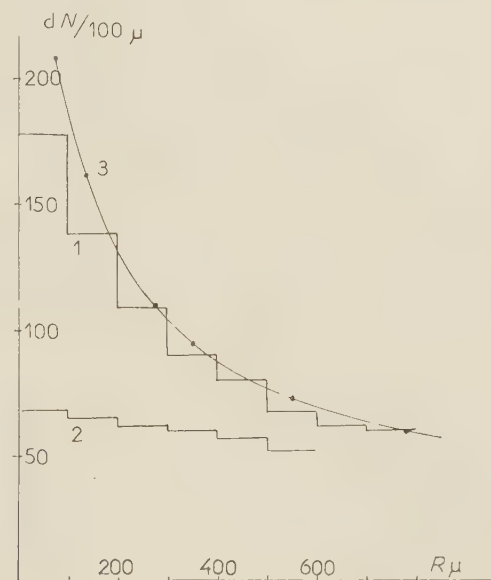


Fig. 11

α) Détermination du pouvoir d'arrêt.

Le pouvoir d'arrêt est défini par le rapport (R_0/R) du parcours d'une particule chargée dans l'air à son parcours dans l'émulsion. WEBB³³ assimile l'émulsion à un composé homogène de gélatine et de bromure d'argent et expose une méthode de calcul à partir du pouvoir d'arrêt des différents constituants.

Le pouvoir d'arrêt différentiel pour chaque élément est donné par :

$$\frac{\Delta R_0}{\Delta R} = \frac{N}{N_0} \cdot \frac{s}{s_0}$$

où N_0 est le nombre d'atomes par cm^3 d'air ; N est le nombre d'atomes par cm^3 d'émulsion ; $\frac{s}{s_0}$ le pouvoir d'arrêt du constituant par rapport à l'air.

Comme $s_0=1$, si l'on remplace N et N_0 par les quantités équivalentes $N=k \frac{d}{A}$ et $N_0=k \frac{d_0}{A_0}$, où d est la densité de la substance et A la masse atomique des atomes constituants, il vient :

$$\frac{\Delta R_0}{\Delta R} = \frac{d \cdot A_0}{d_0 \cdot A} \cdot s$$

Or, BRAGG a établi que le pouvoir d'arrêt d'un composé chimique formé de différents types d'atomes a la propriété d'additivité ; nous pouvons donc écrire pour un corps composé :

$$\frac{\Delta R_0}{\Delta R} = \frac{n}{N_0} \sum_i N_i s_i$$

où :

N_i est le nombre d'atomes de la i^{e} espèce dans chaque molécule, de pouvoir d'arrêt s_i ;
 n est le nombre de molécules du composé par cm^3 .

Puisque $n = \frac{d}{\sum N_i A_i}$ et $N_0 = k \frac{d_0}{A_0}$, il vient :

$$\frac{\Delta R_0}{\Delta R} = \frac{A_0 d}{d_0} \frac{\sum N_i s_i}{\sum N_i A_i}$$

Cette relation peut être mise sous la forme :

$$\frac{\Delta R_0}{\Delta R} = \frac{A_0 d}{d_0} \sum_i \frac{p_i s_i}{A_i} \quad \text{avec} \quad p_i = \frac{N_i A_i}{\sum_j N_j A_j}$$

(p_i est le poids fractionnaire de chaque élément dans le composé).

La détermination du pouvoir d'arrêt nécessitant la connaissance de la composition de l'émulsion, nous avons été amenés à calculer le nombre d'atomes par cm^3 de chacun des constituants. Les résultats sont donnés dans le tableau suivant :

Ag	0,6173	$\cdot 10^{22}$	atomes/ cm^3
Br	0,6173	$\cdot 10^{22}$	»
C	1,8077	$\cdot 10^{22}$	»
N	0,4109	$\cdot 10^{22}$	»
S	0,01718	$\cdot 10^{22}$	»
H	4,2435	$\cdot 10^{22}$	»
O	1,2641	$\cdot 10^{22}$	»

Connaissant le pouvoir d'arrêt atomique de chaque élément, nous en déduisons la valeur du pouvoir d'arrêt différentiel $\frac{\Delta R_0}{\Delta R}$ ce qui nous permet de calculer le pouvoir d'arrêt de nos émulsions pour différentes énergies :

E (MeV)	R_0/R	E (MeV)	R_0/R
0,5	1 475	8	1 723,75
1	1 534,6	9	1 729,4
2	1 621,4	10	1 734,1
3	1 654,3	11	1 738,2
4	1 678,1	12	1 741,3
5	1 694,8	13	1 744,1
6	1 707,25	14	1 764,4
7	1 716,4	15	1 748,2

A partir de ces résultats, nous avons obtenu la courbe parcours-énergie relative à nos émulsions (fig. 12).

β) Détermination de la sensibilité.

L'histogramme granulation-parcours résiduel (fig. 11) nous montre qu'un proton de parcours résiduel $R=800 \mu\text{m}$ dans nos émulsions présente une granulation moyenne de 60 grains par 100 μm . D'après la courbe parcours résiduel-énergie que nous avons pu tracer dans le cas de nos émulsions (fig. 12), cette granulation correspond à un proton de 11 MeV, donc de $\beta=0,1529$.

Les cristaux de nos émulsions ayant un diamètre moyen de 0,03 μm , l'énergie maximale d'un rayon δ qui ne sort pas du cristal est d'environ 1 000 eV (valeur déduite du parcours des électrons lents dans les solides³⁴, compte tenu du fait que, dans le cas des Ilford G5 dont le diamètre des cristaux est de 0,26 μm , la valeur généralement adoptée est 5 000 eV).

En prenant $E_1=400$ eV, comme énergie minimale nécessaire pour rendre un cristal de son émulsions développable, la relation utilisée par M.MORAND *et al.*¹¹ nous conduit à 62 électrons émis par 100 μm d'émulsion pour un proton de $\beta=0,1529$. Cette densité correspond à une granulation d'environ 60 grains par 100 μm , la probabilité pour que plusieurs électrons soient excités dans un

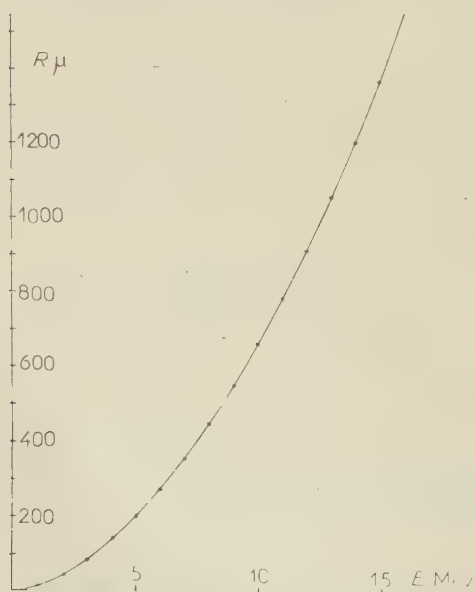


Fig. 12

même cristal étant très faible à cause des dimensions de ce cristal.

Ce calcul confirme bien que nos émulsions ont une sensibilité très supérieure à celle des émulsions J.C.S. dont le seuil de développabilité était de 700 eV.

3. COURBE THÉORIQUE GRANULATION-PARCOURS. — La sensibilité étant fixée, le nombre de cristaux rendus développables est seulement fonction de la composition de l'émulsion, de la nature de la particule (charge) et de sa vitesse. Pour des particules et des émulsions respectivement identiques :

$$\frac{d\mathcal{N}}{dR} = \frac{k}{\beta^2 c^2}$$

$d\mathcal{N}/dR$: nombre d'électrons excités sur un parcours dR donné, $\beta=v/c$, v : vitesse de la particule ; la constante k dépend uniquement de la composition de l'émulsion³⁵.

Nous avons donc déterminé, pour différentes valeurs de β , la granulation correspondante. Les résultats sont représentés par la courbe 3, figure 11. On voit que l'accord est tout à fait satisfaisant.

C. Conclusion. — Après avoir calculé le pouvoir d'arrêt de nos émulsions, nous avons trouvé que le seuil de développabilité d'un cristal de bromure d'argent est de 400 eV, en considérant que seuls les rayons δ de faible énergie interviennent dans la formation de l'image latente. Etant donné la dimension des cristaux, cette sensibilité doit être considérée comme assez élevée.

La courbe théorique granulation-parcours est en parfait accord avec l'histogramme expérimental. Elle nous permet d'évaluer l'énergie maximale des traces de protons observés qui est de 18,5 MeV, correspondant à une granulation de 35 grains par 100 μm .

Ces traces sont facilement reconnaissables, puisque la limite inférieure de granulation d'une trace visible, compte tenu de la densité de voile, est de 17 grains par 100 μm .

VI. CONCLUSION

Les émulsions nucléaires obtenues par bromuration d'un hydrosol d'argent dispersé dans la gélatine présentent de grands avantages.

Les grains obtenus, nombreux et très fins, permettent une meilleure discrimination des traces. La précision des mesures s'en trouve améliorée.

Les nouvelles techniques de bromuration, de sensibilisation et de développement à p_H contrôlé que nous avons mises au point nous ont permis d'obtenir une sensibilité remarquable, vu la dimension des cristaux ; elles nous ont également permis de réduire notablement la densité de voile.

En considérant que seuls les rayons δ de faible énergie interviennent dans la formation de l'image latente, nous avons pu calculer l'énergie minimale nécessaire pour rendre un cristal développable. Cette énergie est d'environ 400 eV.

Ces résultats paraissent susceptibles d'être améliorés, par exemple, grâce à une étude plus systématique de la sensibilisation à l'or, car les premiers résultats obtenus montrent que la sensibilité peut être encore augmentée.

D'autre part, l'augmentation de la concentration en bromure d'argent permettrait d'obtenir une valeur plus élevée de la granulation des traces. Pour pouvoir accroître cette concentration, il suffirait d'utiliser un argent colloïdal plus pauvre en substances protectrices que l'argent colloïdal répondant aux spécifications du Codex français.

RÉFÉRENCES

- ¹ N.A.PERFILOV *et al.*, *Zh. nauch. prikl. Fot. Kine.*, t. 5, n° 4, 1960, p. 262-273.
- ² P.DEMERS, « Ionographie », P.U. Montréal, (1958).
- ³ N.A.PERFILOV, P.CÜER, F.SIMON, A.J.OLIVER, J.KUBAL, W.MARKOCKI & P.DEMERS, « Phot. Corpusculaire, II », Montréal (1958).
- ⁴ N.LEROY, D.E.S., Paris, 1929.
- ⁵ J.COLOMER & C.SCHOEBEL, *Sci. Indust. phot.*[2], t. 29, n° 12, 1958, p. 449-451.

- ⁶ M.MORAND, J.COLOMER & C.SCHOEBEL, *C.R. Ac. Sc.*, t. **246**, 1958, p. 1847-1849.
- ⁷ J.COLOMER, Thèse Paris 1960 ; *Sci. Indust. phot.*[2], t. **31**, p. 1-19.
- ⁸ M.MORAND, J.C.FAYOLLE & S.DESPRESZ-REBAUD, *C.R. Ac. Sc.*, t. **252**, 1961, p. 542-543.
- ⁹ H.FRIESER & E.KLEIN, *Sci. Indust. phot.*[2], t. **30**, n° 2, 1959, p. 55.
- ¹⁰ J.EGGERT, *Freiberger Forschungshefte*, n° 38 B, p. 226-230 ; *Sci. Indust. phot.*[2], t. **32**, n° 5, 1961, p. 151.
- ¹¹ M.MORAND *et al.*, *Sci. Indust. phot.*[2], t. **31**, n° 2, 1960, p. 342-346.
- ¹² H.L.BRADT & B.PETERS, *Phys. Rev.*, t. **74**, 1948, p. 1828.
- ¹³ M.MORAND, J.COLOMER & C.SCHOEBEL, *C.R. Ac. Sc.*, t. **249**, 1959, p. 418-420.
- ¹⁴ H.FREISER, G.HEIMANN & E.RANZ, *Phot. Korr.*, t. **97**, n° 5, 1961, p. 71-78.
- ¹⁵ C.S.BOGOMOLOV, « Phot. Corpusculaire, II », Montréal (1958), p. 106.
- ¹⁶ H.FARAGGI & A.GARIN, *Nuovo Cim.*[10], t. **17**, 1960, p. 830-836.
- ¹⁷ P.GLAFKIDES, « Chimie Photogr. », Montel (1957), p. 269.
- ¹⁸ J.BENES, *Phot. Korr.*, t. **97**, 1961, p. 182-189.
- ¹⁹ I.R.PROTAS, Y.A.KRAKAU & P.T.SIDORENKOVA, *Usp. nauch. Fot.*, t. **7**, 1960, p. 87-95.
- ²⁰ I.A.NOVIKOV & N.S.GAFUROVA, *Usp. nauch. Fot.*, t. **7**, 1960, p. 96-102.
- ²¹ E.RÖLL, *Zeits. wiss. Phot.*, t. **55**, 1961, p. 114-120.
- ²² B.TAVERNIER & P.FAELENS, *Sci. Indust. phot.*[2], t. **33**, n° 4, 1962, p. 125-128.
- ²³ P.FAELENS, B.TAVERNIER & F.CLAES, *Phot. Korr.*, t. **98**, n° 1, 1962, p. 3-7.
- ²⁴ P.FAELENS, *Sci. Indust. phot.*[2], t. **28**, 1957, p. 68-70.
- ²⁵ C.H.GEGAUFF & J.P.LONCHAMP, *Nuovo Cim.*[10], t. **16**, n° 3, 1960, p. 520-531.
- ²⁶ J.C.FAYOLLE, D.E.S. Paris, 1961.
- ²⁷ L.PINTO HESPAÑOL, *Helv. phys. Acta*, t. **33**, 1960, p. 994-995.
- ²⁸ M.NICOLAE, *Sci. Indust. phot.*[2], t. **33**, n° 5, 1962, p. 161-166.
- ²⁹ D.M.SAMUELOVITCH & H.S.BARINOVA, *Jour. Prib. et Techn. exp. Ac. Sc. U.R.S.S.*, n° 3, 1956.
- ³⁰ H.BRAUN, « Phys. Corp. Strasbourg ». Communication privée.
- ³¹ P.PASCAL, « Nouveau traité de Chimie Minérale », t. **15**, p. 429 (1957).
- ³² J.BERMOND, Thèse Caen, 1961.
- ³³ J.H.WEBB, *Phys. Rev.*, t. **74**, 1948, p. 511-532.
- ³⁴ H.KANTER & E.J.STERNGLASS, *Phys. Rev.*, t. **126**, 1962, p. 620-626.
- ³⁵ M.MORAND & S.DESPRESZ-REBAUD, « Congrès de Munich », septembre 1962.

REMERCIEMENTS

Ce travail a été effectué au laboratoire de Physique Enseignement de la Faculté des Sciences de Paris. Je tiens à exprimer ma profonde gratitude à M. le Professeur M.MORAND, Directeur du Laboratoire et à M^{me} Geneviève DARMOIS-SUTRA, Sous-Directeur, pour avoir bien voulu m'accueillir dans leur laboratoire et pour les précieux conseils qu'ils n'ont cessé de me prodiguer.

Il me serait difficile de dire tout ce que je dois à la très précieuse collaboration de M^{me} S. DESPREZ-REBAUD et de M^{lle} J.LORY. Par leur intérêt constant tout au long de ce travail, elles m'ont apporté une aide très efficace. Je leur exprime ma plus vive gratitude.

Je remercie M. le Professeur J.TEILLAC, Directeur du laboratoire de Physique Nucléaire d'Orsay, qui m'a permis de réaliser des expositions au synchrocyclotron et MM. RIOU et MIKALOWITZ qui les ont faites.

Mes remerciements vont à M. ROUSSELOT qui a bien voulu me fournir aimablement toutes les sortes de gélatine dont j'avais besoin.

Je remercie le Docteur GRANBOULAN et M. BETHENCOURT qui m'ont facilité les expériences avec le tritium et les expositions au bêta-tron de Villejuif.

Je remercie enfin tous mes camarades du laboratoire pour l'ambiance cordiale qu'ils ont su créer autour de moi, et en particulier M^{lle} HUIQO qui m'a prêté son précieux concours pour la réalisation des courbes et des figures.

TABLE DES MATIÈRES

I.	INTRODUCTION	5
II.	-- DONNÉES GÉNÉRALES SUR LA PRÉPARATION D'ÉMULSIONS IONOGRAPHIQUES PAR BROMURATION D'ARGENT COLLOÏDAL	6
	A. Principe	6
	B. Technologie	6
	C. Conclusion	10
III.	ÉTUDE DU MODE DE BROMURATION	10
	A. Mécanisme de la bromuration	10
	B. Technique de la bromuration	11
	C. Résultats	12
IV.	= INFLUENCE DE DIVERS FACTEURS SUR LA DENSITÉ DE VOILE	12
	A. Méthode de mesure	12
	B. Influence de la nature de la gélatine	13
	C. Influence du mode de sensibilisation	13
	D. Influence du mode de développement	13
	E. Conclusion	15
V.	· RÉSULTATS OBTENUS PAR IRRADIATION DES ÉMULSIONS	16
	A. Exposition des plaques	16
	B. Etude des plaques exposées aux protons	16
	C. Conclusion	19
VI.	— CONCLUSION	19
	RÉFÉRENCES	19
	REMERCIEMENTS	20

DEUXIÈME THÈSE

Propositions données par la Faculté

SUR L'EXISTENCE PROBABLE DE DEUX SORTES DE NEUTRINOS.

Vu

ET PERMIS D'IMPRIMER

Le Recteur de l'Académie
de Paris,

Jean ROCHE.

VU ET APPROUVÉ

Paris, le 26 décembre 1962

Le Doyen de la Faculté des Sciences

Marc ZAMANSKY.

J. E. DUBOIS	T	Chimie organique.	MATTLER	T	Physique (S.P.C.N.).
LAMOTTE	T	Zoologie (E.N.S.).	L. MICHEL		Phys. théor. des hautes éner-
A. MICHEL	T	Chimie Minérale (Orsay).			gies (Orsay).
OLMER	T	Energetique générale.	BERGERARD		Zoologie (Orsay).
ROUAULT	T	Electricité (Orsay).	BERTIN		Electronique (Orsay).
GAUTHIER	T	Mécanique appliquée.	BOUSSIÈRES		Chimie des radioéléments
BARCHEWITZ	T	Chimie Physique.			(Orsay).
BROSSEL	T	Physique atomique.	M ^{me} COUTURE		Thermodynamique et Méca-
BUSER		Physiologie comparée.			nique physique.
CAMUS		Physiologie vég. (B.M.P.V.).	ELLENBERGER		Géologie appl. sur le terrain.
CASTAING	T	Physique (Orsay).	FRANC		Biol. animale (P.C.B.).
CURIEN	T	Minéralogie et Cristallog.	SCHNELL		Botanique tropicale (Orsay).
MOYSE	T	Physiologie végétale (Orsay).	STOLKOWSKI		Physiologie générale.
NOÏROT		Evolution des êtres org.	ACHER		Chimie biologique (Orsay).
PANNETIER	T	Chimie générale (Orsay).	BAUDOUIN		Biologie animale (P.C.B.).
POSSOMPES	T	Zoologie.	BEAUMONT		Biologie animale (S.P.C.N.).
PULLMANN	T	Chimie théorique.	BLAMONT		Géophysique ionosphère.
TEILLAC	T	Physique nucl. et Radioact.	BOURREAU		Botanique.
TONNELAT	T	Biologie physico-chimique.	D. CURIE		Physique (M.G.P.).
VILLE	T	Econometrie.	DURAND-DELGA		Géologie.
WILLEMART		Chimie (P.C.B.).	FREON	T	Chimie organique (Orsay).
DODE	T	Chimie (Orsay).	HELLER		Physiologie végétale.
FREYMANN	T	Recherches physiques.	TORTRAT		Calcul des probabilités.
GUINOCHET	T	Biologie vég. S.P.C.N. (Orsay).	CAILLEUX		Géologie (S.P.C.N.).
ROLLET	T	Chimie (P.C.B.).	MAGNAN	T	Physique (S.P.C.N.).
M ^{lle} JOSIEN	T	Chimie (S.P.C.N.).	DAUDEL	T	Mécanique ondulatoire appl.
CHEVALLEY	T	Géométrie algébrique et théo-			à la chimie théor. et à la
		rie des groupes.			physique nucléaire.
ARNOULT	T	Electronique (Orsay).	M ^{lle} FOURCROY		Biologie végétale (S.P.C.N.).
CHAPELLE	T	Physique (Orsay).	M ^{me} CHOQUET-BRUHAT	T	Mécanique analytique et Méc.
DELANGE	T	Mathématiques (Orsay).			céleste.
DENY	T	Mathématiques génér. (Orsay).	M ^{lle} VEIL		Physiologie générale.
GERMAIN	T	Mécan. théor. des fluides.	LWOFF	T	Microbiologie.
G. LUCAS	T	Géologie.	SIESTRUNCK	T	Mécanique phys. et expérim.
ALLARD	T	Chimie physique.	LACOMBE	T	Métallur. des métaux nucl.
BERTHELOT	T	Phys. fondamentale des hautes	BROCHARD	T	Physique P.C.B. (Orsay).
		énergies (Orsay).	CABANNES	T	Mécanique générale.
BRICART	T	Météorologie et phys. de	LESIEUR	T	Mathématiques M.P.C. (Orsay)
		l'atmosphère.	MAZET	T	Mécanique générale (Orsay).
M ^{me} ALBE-FESSARD ..		Psychophysiologie.	CAIRE		Géographie phys. et Géologie
FRIEDEL		Physique des solides (Orsay).			dynamique.
M. JULIA		Etudes des moléculaires natu-	COMOLET		Mécanique des fluides.
		relles complexes.	CORABŒUF		Physiologie animale.
LENDER	T	Biol. anim. S.P.C.N. (Orsay).	DELLOUE		Physique de l'exosphère.
MAGAT		Physico-chimie des radioélé-	GORENFLOT		Botanique II (Orsay).
		ments.	HOUILLOU		Biologie animale (P.C.B.).
M ^{lle} QUINTIN	T	Electrochimie.	J. JULLIEN		Chimie (P.C.B.).
MONOD	T	Chimie du métabolisme.	MALGRANGE		Tech. Math. de la Physique.
BENOIT	T	Physiologie animale (Orsay).	OLIVIER		Antropologie.
DE POSSEL	T	Analyse numérique.	NOZERAN	T	Botanique II (Orsay).
CHARLOT	T	Chimie analytique.	BLANC-LAPIERRE		Physique E.N.S. (Orsay).
HAISSINSKY	T	Radiochimie.	CHEVAUGEON	T	Botanique (Orsay).
LEMÉE	T	Physiol. vég. B.M.P.V. (Orsay)	KAHANE	T	Mathématiques (Orsay).
GUÉRIN	T	Chimie M.P.C. (Orsay).	SAMUEL	T	Math. E.N.S. féminines.
M. CHATELET		Chimie (P.C.B.).	KOURGANOFF	T	Astronomie (Orsay).
JEAN	T	Physique nucléaire (Orsay).	THIRY	T	Mécanique céleste.

Secrétaire général R. POULLAIN.

